

アパタイトセラミックスによる ALPS 沈殿廃棄物の安定固化技術の開発

(3) アパタイト固化体のゾルゲル法、水熱法による合成と物性

Development of stable solidification technique of ALPS sediment wastes by apatite ceramics

(3) Synthesis of apatite waste form by sol/gel and hydrothermal methods and their properties

*中瀬 正彦¹, 増田 歩¹, 金川 俊^{1,2}, 内海 和夫¹, 土方 孝敏², 竹下 健二¹

東京工業大学¹, 一般財団法人電力中央研究所²

ALPS 沈殿廃棄物中の主要構成元素について、ゾルゲル法と水熱法によるアパタイト固化実験を行った。合成挙動と得られたアパタイト粉末の物性について報告する。

キーワード: ALPS 沈殿物、固化、アパタイト、構造、物性

1. 緒言 多核種除去設備(ALPS)による汚染水処理では鉄共沈系廃棄物と炭酸塩沈殿が発生し、これらの安定固化法が求められている。二種類の廃棄物の主要元素である Fe、Mg、Ca のアパタイト(HAP)固化を実施した。HAP 合成方法は大きく分けて 1.固相反応法(ソリッド法)、2.ゾルゲル法、3.水熱法などが挙げられる。固相反応法は原理的には全元素が固化物中に残るが、元素の組合わせや組成比に限られる。一方でゾルゲル法や水熱法は汎用性が高いが、溶液から沈殿物形態で前駆体を得るため固化対象元素が完全には前駆体に取り込まれない場合がある。こういった特性を踏まえて ALPS 沈殿系廃棄物構成元素の HAP 化に取り組んだ。

2. 実験方法 HAP は種々の元素組成が可能だが、ここでは Fe:Ca or Mg:Cs = 1:8:1 則ち $\text{FeCa}_8\text{Cs}(\text{PO}_4)_4(\text{OH})_2$ 、 $\text{FeMg}_8\text{Cs}(\text{PO}_4)_4(\text{OH})_2$ の HAP 合成を目指した。ゾルゲル法はカチオン (Fe、Ca or Mg、Cs) 硝酸塩に水 15 mL、MeOH 30 mL、 NH_4 水の順に加えて常温で 10 分間攪拌し、そこに水 5 mL、MeOH 5 mL に溶かした $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ を滴下後に 24 時間室温で攪拌して前駆体を得た。沈殿物を取り分け、真空乾燥した後に 700°C で 6 時間加熱して目的物を得た。水熱法ではカチオン(Fe、Sr or Ca or Mg、Cs)硝酸塩を水 10 mL に溶かした後に $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ を加え、そこにアンモニア水 10 mL を滴下して溶液をテフロン容器に移し、ステンレス製の水熱セルに収めて密閉し、200°C、24 時間加熱した。溶液から固体を回収し、80°C で真空乾燥して目的物を得た。

3. 結果と考察 図 1 に得られた HAP の XRD パターンを示す。データベースとの照合により、ゾルゲル法での FeCaCs-HAP は Fe と Ca からなるリン酸塩、FeMgCs-HAP はリン酸 Mg に近く、水熱法による FeCaCs-HAP、FeMgCs-HAP は両者共に Ca-HAP ($\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3(\text{OH})$)に近い構造が得られた。濃硝酸による全溶解試験により、Cs は仕込み量の 20%程度の取り込みが確認され、上記の構造に固溶ないしは構造欠陥的に取り込まれていると示唆された。実際の沈殿廃棄物には Cs や Sr は極微量しか含まれず、取り込み量として十分と判断する。固相反応法では Sr^{2+} は容易に HAP 骨格に取り込まれたが、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} では複雑な XRD となった。これはイオン半径の違いによるものと考えられる。従って HAP の元素組成により適切な合成手法を選定する必要がある。

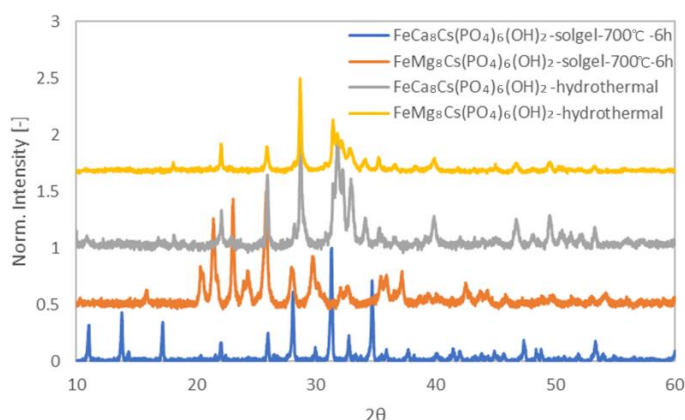


図 1 ゾルゲル法並びに水熱法で合成した FeCaCs-HAP 並びに FeMgCs-HAP の XRD パターン

4. 結論 種々の方法で ALPS 由来の鉄共沈系廃棄物、炭酸塩沈殿廃棄物の HAP 固化を実施した。今後は更に実際の廃棄物組成や化学状態に即した合成に調整する。発表では浸出試験と表面物性についても触れる。

本研究は、日本原子力研究開発機構「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」により実施された「アパタイトセラミックスによる ALPS 沈殿廃棄物の安定固化技術の開発」の成果である。

* Masahiko Nakase¹, Ayumu Masuda¹, Shun Kanagawa^{1,2}, Kazuo Utsumi¹, Takatoshi Hijikata² and Kenji Takashita¹

¹ Tokyo Institute of Technology, ²Central Research Institute of Electric Power Industry